

2 August 2006

SciFinder

Page: 7

Bibliographic Information

Preparation of organosilanes as insecticides. Franke, Helga; Joppien, Hartmut. (Schering A.-G., Fed. Rep. Ger.). Ger. Offen. (1987), 5 pp. CODEN: GWXXBX DE 3604781 A1 19870827 Patent written in German. Application: DE 86-3604781 19860213. Priority: . CAN 108:132041 AN 1988:132041 CAPLUS (Copyright (C) 2006 ACS on SciFinder (R))

Patent Family Information

<u>Patent No.</u>	<u>Kind</u>	<u>Date</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
DE 3604781	A1	19870827	DE 1986-3604781	19860213

Priority Application

DE 1986-3604781	19860213
-----------------	----------

Abstract

R1Me2SiCH2CH2CH2R2 [I; R1 = substituted Ph, R2 = (substituted) Ph or pyridyl] are prepd. as insecticides. Sequential Grignard reactions of Me2SiCl2 in THF with 4-ClC6H4MgBr followed by 3-(3-phenoxyphenyl)propylmagnesium bromide gave 46% I (R1 = 4-ClC6H4, R2 = 3-phenoxyphenyl) which, at 0.1% in an aq. emulsion, proved 100% effective against *Plutella xylostella*.

①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

①2 Offenlegungsschrift
①1 DE 3604781 A1

②1 Aktenzeichen: P 36 04 781.3
②2 Anmeldetag: 13. 2. 86
④3 Offenlegungstag: 27. 8. 87

⑤1 Int. Cl. 4:
C07 F 7/08
C 07 F 7/10
A 01 N 55/00

Behördeneigenthum

DE 3604781 A1

⑦1 Anmelder:

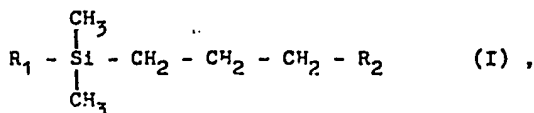
Schering AG, Berlin und Bergkamen, 1000 Berlin, DE

⑦2 Erfinder:

Franke, Helga, Dr.; Joppien, Hartmut, Dr., 1000 Berlin, DE

⑤4 Neue Silane, Verfahren zu ihrer Herstellung und diese Verbindungen enthaltende insektizide Mittel

Die Erfindung betrifft neue Silane der allgemeinen Formel



in der

R₁ Aryl, durch C₁-C₄-Alkyl, Halogen-C₁-C₄-alkyl, Phenyl-C₁-C₄-alkyl, C₂-C₄-Alkenyl, Halogen-C₂-C₄-alkenyl, Phenyl-C₂-C₄-alkenyl, C₂-C₄-Alkinyl, Halogen-C₂-C₄-alkinyl, Phenyl-C₂-C₄-alkinyl, C₁-C₄-Alkoxy, Halogen-C₁-C₄-alkoxy, Phenyl-C₁-C₄-alkoxy, C₂-C₄-Alkenyloxy, Halogen-C₂-C₄-alkenyloxy, Phenyl-C₂-C₄-alkenyloxy, C₂-C₄-Alkinyloxy, Halogen-C₂-C₄-alkinyloxy, Phenyl-C₂-C₄-alkinyloxy, Alkylsulfonyloxy, Halogenalkylsulfonyloxy, Arylsulfonyloxy, Halogen, Cyan, Nitro, Aryloxy, Halogenaryloxy, C₁-C₄-Alkyl-aryloxy oder Nitroaryloxy substituiertes Aryl und

R₂ Phenyl, Pyridyl oder durch C₁-C₆-Alkyl, Halogen-C₁-C₆-alkyl, Phenyl-C₁-C₆-alkyl, durch O-, N- oder S-Atome unterbrochenes C₁-C₆-Alkyl, C₂-C₄-Alkenyl, Halogen-C₂-C₄-alkenyl, Phenyl-C₂-C₄-alkenyl, C₁-C₄-Alkoxy, Halogen-C₁-C₄-alkoxy, Phenyl-C₁-C₄-alkoxy, C₂-C₄-Alkenyloxy, Halogen-C₂-C₄-alkenyloxy, Phenyl-C₂-C₄-alkenyloxy, C₂-C₄-Alkinyloxy, Halogen-C₂-C₄-alkinyloxy, Phenyl-C₂-C₄-alkinyloxy, Aryloxy,

Halogenaryloxy, C₁-C₄-Alkylaryloxy, Arylamino, Halogenarylamino, C₁-C₄-Alkylarylamino, Aryl-N-C₁-C₄-alkyl-amino, Aryl-N-C₁-C₄-acyl-amino, Aroyl, Halogenaroyl, C₁-C₄-Alkylaroyl, Aryl, Halogenaryl, C₁-C₄-Alkylaryl oder durch Halogen ein- oder mehrfach substituiertes Phenyl oder ...

DE 3604781 A1

Patentansprüche

1. Silane der allgemeinen Formel I



in der

R₁ Aryl, durch C₁–C₄-Alkyl, Halogen-C₁–C₄-alkyl, Phenyl-C₁–C₄-alkyl, C₂–C₄-Alkenyl, Halogen-C₂–C₄-alkenyl, Phenyl-C₂–C₄-alkenyl, C₂–C₄-Alkinyl, Halogen-C₂–C₄-alkinyl, Phenyl-C₂–C₄-alkinyl, C₁–C₄-Alkoxy, Halogen-C₁–C₄-alkoxy, Phenyl-C₁–C₄-alkoxy, C₂–C₄-Alkenyloxy, Halogen-C₂–C₄-alkenyloxy, Phenyl-C₂–C₄-alkenyloxy, C₂–C₄-Alkinyloxy, Halogen-C₂–C₄-alkinyloxy, Phenyl-C₂–C₄-alkinyloxy, Alkylsulfonyloxy, Halogenalkylsulfonyloxy, Arylsulfonyloxy, Halogen, Cyan, Nitro, Aryloxy, Halogenaryloxy, C₁–C₄-Alkyl-aryloxy oder Nitroaryloxy substituiertes Aryl und

R₂ Phenyl, Pyridyl oder durch C₁–C₆-Alkyl, Halogen-C₁–C₆-alkyl, Phenyl-C₁–C₆-alkyl, durch O-, N- oder S-Atome unterbrochenes C₁–C₆-Alkyl, C₂–C₄-Alkenyl, Halogen-C₂–C₄-alkenyl, Phenyl-C₂–C₄-alkenyl, C₁–C₄-Alkoxy, Halogen-C₁–C₄-alkoxy, Phenyl-C₁–C₄-alkoxy, C₂–C₄-Alkenyloxy, Halogen-C₂–C₄-alkenyloxy, Phenyl-C₂–C₄-alkenyloxy, C₂–C₄-Alkinyloxy, Halogen-C₂–C₄-alkinyloxy, Phenyl-C₂–C₄-alkinyloxy, Aryloxy, Halogenaryloxy, C₁–C₄-Alkylaryloxy, Arylamino, Halogenarylamino, C₁–C₄-Alkylarylamo, Aryl-N–C₁–C₄-alkyl-amino, Aryl-N–C₁–C₄-acyl-amino, Aroyl, Halogenaroyl, C₁–C₄-Alkylaroyl, Aryl, Halogenaryl, C₁–C₄-Alkylaryl oder durch Halogen ein- oder mehrfach substituiertes Phenyl oder Pyridyl

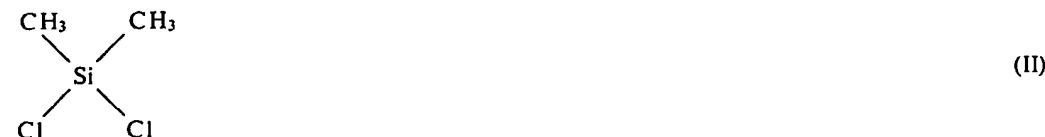
bedeuten.

2. Silane gemäß Anspruch 1, worin

R₁ Chlorphenyl, Bromphenyl, Fluorphenyl, Methylphenyl, Methoxyphenyl, Ethoxyphenyl, Difluormethoxyphenyl, Fluorethoxyphenyl, Trifluorethoxyphenyl und

R₂ Phenoxyphenyl, Fluor-phenoxyphenyl oder Phenoxyphenyl darstellen.

3. Verfahren zur Herstellung von Silanen der allgemeinen Formel I, dadurch gekennzeichnet, daß man Dimethyldichlorsilan der Formel II



zuerst mit einer Grignardverbindung der allgemeinen Formel III



zu einer Zwischenverbindung der allgemeinen Formel IV



und diese anschließend mit einer Grignardverbindung der allgemeinen Formel V



zu dem gewünschten Verfahrensprodukt umsetzt, wobei R₁ und R₂ die oben genannte Bedeutung haben und X Halogen bedeutet.

4. Insektizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer Verbindung gemäß den Ansprüchen 1 und 2.

5. Insektizide Mittel gemäß Anspruch 4 in Mischung mit Träger- und/oder Hilfsstoffen.

6. Verwendung von Verbindungen gemäß den Ansprüchen 1 und 2 zur Bekämpfung von Insekten.

Beschreibung

Die Erfindung betrifft neue Silane, Verfahren zu ihrer Herstellung und diese Verbindungen enthaltende insektizide Mittel.

Es ist bereits bekannt, daß bestimmte Silane insektizide Eigenschaften besitzen (JP-OS 1 23 491/85).

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Bereitstellung von neuen Verbindungen, die eine bessere insektizi-

de Wirkung zeigen als die für diesen Zweck bereits bekannten Verbindungen.
Es wurde nun gefunden, daß Silane der allgemeinen Formel I



in der

R₁ Aryl, durch C₁-C₄-Alkyl, Halogen-C₁-C₄-alkyl, Phenyl-C₁-C₄-alkyl, C₂-C₄-Alkenyl, Halogen-C₂-C₄-alkenyl, Phenyl-C₂-C₄-alkenyl, C₂-C₄-Alkynyl, Halogen-C₂-C₄-alkynyl, Phenyl-C₂-C₄-alkynyl, C₁-C₄-Alkoxy, Halogen-C₁-C₄-alkoxy, Phenyl-C₁-C₄-alkoxy, C₂-C₄-Alkenyloxy, Halogen-C₂-C₄-alkenyloxy, Phenyl-C₂-C₄-alkenyloxy, C₂-C₄-Alkinyloxy, Halogen-C₂-C₄-alkinyloxy, Phenyl-C₂-C₄-alkinyloxy, Alkylsulfonyloxy, Halogenalkylsulfonyloxy, Arylsulfonyloxy, Halogen, Cyan, Nitro, Aryloxy, Halogenaryloxy, C₁-C₄-Alkylaryloxy oder Nitroaryloxy substituiertes Aryl und

R₂ Phenyl, Pyridyl oder durch C₁-C₆-Alkyl, Halogen-C₁-C₆-alkyl, Phenyl-C₁-C₆-alkyl, durch O-, N- oder S-Atome unterbrochenes C₁-C₆-Alkyl, C₂-C₄-Alkenyl, Halogen-C₂-C₄-alkenyl, Phenyl-C₂-C₄-alkenyl, C₁-C₄-Alkoxy, Halogen-C₁-C₄-alkoxy, Phenyl-C₁-C₄-alkoxy, C₂-C₄-Alkenyloxy, Halogen-C₂-C₄-alkenyloxy, Phenyl-C₂-C₄-alkenyloxy, C₂-C₄-Alkinyloxy, Halogen-C₂-C₄-alkinyloxy, Phenyl-C₂-C₄-alkinyloxy, Aryloxy, Halogenaryloxy, C₁-C₄-Alkylaryloxy, Arylamino, Halogenarylamino, C₁-C₄-Alkylarylamino, Aryl-N-C₁-C₄-alkyl-amino, Aryl-N-C₁-C₄-acyl-amino, Aroyl, Halogenaroyl, C₁-C₄-Alkylaroyl, Aryl, Halogenaryl, C₁-C₄-Alkylaryl oder durch Halogen ein- oder mehrfach substituiertes Phenyl oder Pyridyl

bedeuten, eine bessere Wirkung gegen Insekten besitzen als bereits bekannte, strukturverwandte Verbindungen. Überraschenderweise wurden hier neue Wirkstoffe gefunden, die gegen wichtige Schädlinge, wie zum Beispiel *Plutella xylostella* oder *Spodoptera littoralis*, wirksam sind.

Der in der allgemeinen Formel I als R₁ bezeichnete Arylrest umfaßt die Reste Phenyl, 1-Naphthyl, 2-Naphthyl, Benzofuran-5-yl, Benzothiophen-5-yl, Benzofuran-6-yl, Benzothiophen-6-yl, Benzoxazol-5-yl, Benzoxazol-6-yl, Indan-5-yl, Indan-6-yl, 1,4-Benzodioxan-6-yl, 1,3-Benzodioxan-6-yl, 1,3-Benzodioxan-7-yl und 1,3-Benzodioxol-5-yl.

Von den erfindungsgemäßen Verbindungen zeichnen sich durch ihre insektizide Wirkung insbesondere diejenigen aus, bei denen in der allgemeinen Formel I

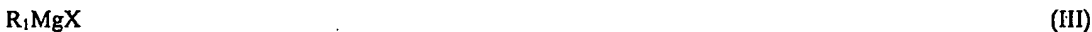
R₁ Chlorphenyl, Bromphenyl, Fluorphenyl, Methylphenyl, Methoxyphenyl, Ethoxyphenyl, Difluormethoxyphenyl, Fluorethoxyphenyl, Trifluorethoxyphenyl und

R₂ Phenoxyphenyl, Fluor-phenoxyphenyl oder Phenoxy-pyridyl darstellen.

Die erfindungsgemäßen Silane lassen sich zum Beispiel herstellen, indem man Dimethyldichlorsilan der Formel II



zuerst mit einer Grignardverbindung der allgemeinen Formel III



zu einer Zwischenverbindung der allgemeinen Formel IV



und diese anschließend mit einer Grignardverbindung der allgemeinen Formel V



zu dem gewünschten Verfahrensprodukt umsetzt, wobei R₁ und R₂ die oben genannte Bedeutung haben und X Halogen bedeutet.

Besonders vorteilhaft ist es, beide Reaktionsschritte in einer Eintopfreaktion durchzuführen.

Als Lösungsmittel eignen sich gegenüber den Reaktanden, insbesondere den Grignardreagenzien, inerte Stoffe, wie aliphatische und aromatische Kohlenwasserstoffe, wie zum Beispiel Hexan, Benzol oder Toluol, und Ether, wie zum Beispiel Diethylether, Tetrahydrofuran oder Dimethoxyethan.

Die Durchführung der Reaktionen erfolgt bei Temperaturen zwischen -78° und 140°C, vorzugsweise bei

20—80°C, in der Regel bei Normaldruck.

Die nach oben genannten Verfahren hergestellten erfindungsgemäßen Verbindungen können nach den üblichen Verfahren aus dem Reaktionsgemisch isoliert werden, beispielsweise durch Abdestillieren des eingesetzten Lösungsmittels bei normalem oder vermindertem Druck oder durch Extraktion.

Ein erhöhter Reinheitsgrad kann in der Regel durch säulenchromatographische Aufreinigung sowie durch fraktionierte Destillation erhalten werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen sind in der Regel farblose Öle, die in praktisch allen organischen Lösungsmitteln gut, in Wasser dagegen schwer löslich sind.

Die Anwendung der erfindungsgemäßen Verbindungen kann in Konzentrationen von 0,0005 bis 5,0%, vorzugsweise von 0,001 bis 0,1% erfolgen, worunter das Gewicht in Gramm Wirkstoff in 100 ml Zubereitung zu verstehen ist.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen können entweder allein, in Mischung miteinander oder mit anderen insektiziden Wirkstoffen angewendet werden. Gegebenenfalls können auch andere Pflanzenschutz- oder Schädlingsbekämpfungsmittel, wie zum Beispiel Insektizide, Akarizide oder Fungizide, je nach dem gewünschten Zweck zugesetzt werden.

Eine Förderung der Wirkintensität und der Wirkungsgeschwindigkeit kann zum Beispiel durch wirkungssteigernde Zusätze, wie organische Lösungsmittel, Netzmittel und Öle erzielt werden. Solche Zusätze lassen daher gegebenenfalls eine Verringerung der Wirkstoffdosierung zu.

Als Mischungspartner können außerdem Phospholipide verwendet werden, zum Beispiel solche aus der Gruppe Phosphatidylcholin, den hydrierten Phosphatidylcholinen, Phosphatidylethanolamin, den N-Acylphosphatidylethanolaminen, Phosphatidylinositol, Phosphatidylserin, Lysolecithin und Phosphatidylglycerol.

Zweckmäßig werden die gekennzeichneten Wirkstoffe oder deren Mischungen in Form von Zubereitungen wie Pulvern, Streumitteln, Granulaten, Lösungen, Emulsionen oder Suspensionen, unter Zusatz von flüssigen und/oder festen Trägerstoffen beziehungsweise Verdünnungsmitteln und gegebenenfalls Haft-, Netz-, Emulgier- und/oder Dispergierhilfsmitteln angewandt.

Geeignete flüssige Trägerstoffe sind zum Beispiel aliphatische und aromatische Kohlenwasserstoffe wie Benzol, Toluol, Xylol, Cyclohexanon, Isophoron, Dimethylsulfoxid, Dimethylformamid, weiterhin Mineralölfractionen und Pflanzenöle.

Als feste Trägerstoffe eignen sich Mineralien, zum Beispiel Bentonit, Silicagel, Talkum, Kaolin, Attapulgit, Kalkstein und pflanzliche Produkte, zum Beispiel Mehle.

An oberflächenaktiven Stoffen sind zu nennen zum Beispiel Calciumligninsulfonat, Polyethylenalkylphenylether, Naphthalinsulfonsäuren und deren Salze, Phenolsulfonsäuren und deren Salze, Formaldehydkondensate, Fettalkoholsulfate sowie substituierte Benzolsulfonsäuren und deren Salze.

Der Anteil des bzw. der Wirkstoffe(s) in den verschiedenen Zubereitungen kann in weiten Grenzen variieren. Beispielsweise enthalten die Mittel etwa 10 bis 90 Gewichtsprozent Wirkstoff, etwa 90 bis 10 Gewichtsprozent flüssige oder feste Trägerstoffe sowie gegebenenfalls bis zu 20 Gewichtsprozent oberflächenaktive Stoffe.

Die Ausbringung der Mittel kann in üblicher Weise erfolgen, zum Beispiel mit Wasser als Träger in Spritzbrühmengen von etwa 100 bis 3000 Liter/Hektar. Eine Anwendung der Mittel im sogenannten Low-Volume und Ultra-Low-Volume-Verfahren ist ebenso möglich wie ihre Applikation in Form von sogenannten Mikrogranulaten.

Die Herstellung dieser Zubereitungen kann in an sich bekannter Art und Weise, zum Beispiel durch Mahl- oder Mischverfahren, durchgeführt werden. Gewünschtenfalls können Zubereitungen der Einzelkomponenten auch erst kurz vor ihrer Verwendung gemischt werden, wie es zum Beispiel im sogenannten Tankmixverfahren in der Praxis durchgeführt wird.

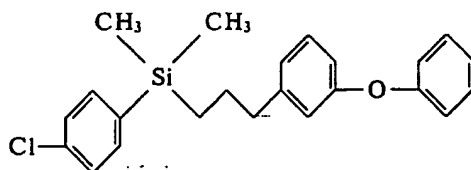
Zur Herstellung der Zubereitungen werden zum Beispiel die folgenden Bestandteile eingesetzt:

- a) 80 Gewichtsprozent Wirkstoff
- 15 Gewichtsprozent Kaolin
- 5 Gewichtsprozent oberflächenaktive Stoffe auf Basis des Natriumsalzes des N-Methyl-N-oleyl-taurins und des Calciumsalzes der Ligninsulfonsäure
- b) 45 Gewichtsprozent Wirkstoff
- 5 Gewichtsprozent Natriumaluminiumsilikat
- 15 Gewichtsprozent Cetylpolglycolether mit 8 Mol Ethylenoxid
- 2 Gewichtsprozent Spindelöl
- 10 Gewichtsprozent Polyethylenglycol
- 23 Gewichtsprozent Wasser
- c) 20 Gewichtsprozent Wirkstoff
- 35 Gewichtsprozent Bentonit
- 8 Gewichtsprozent Zellpech
- 2 Gewichtsprozent Natrium Salz des N-Methyl-N-oleyl-taurins
- 35 Gewichtsprozent Kieselsäure
- d) 20 Gewichtsprozent Wirkstoff
- 75 Gewichtsprozent Isophoron
- 5 Gewichtsprozent Kombinationsemulgator aus Calciumdodecylbenzolsulfonat und Fettalkoholpolyglycolether

Das nachfolgende Beispiel erläutert die Herstellung der erfindungsgemäßen Verbindungen.

Herstellungsbeispiel 1

(4-Chlorphenyl)-dimethyl[3-(3-phenoxyphenyl)-propyl]-silan



Zu 2,4 ml (0,02 mol) Dichlordimethylsilan in 50 ml absolutem Tetrahydrofuran wird bei Raumtemperatur eine Grignardlösung, hergestellt aus 3,85 g (0,02 mol) 4-Bromchlorbenzol und 0,49 g (0,02 mol) Magnesium in 20 ml Tetrahydrofuran, getropft und eine Stunde bei Raumtemperatur nachgerührt. Anschließend wird eine zweite Grignardlösung, bereitet aus 5,82 g (0,02 mol) 3-(3-Phenoxyphenyl)-propylbromid und 0,49 g (0,02 mol) Magnesium in 20 ml Tetrahydrofuran, zugetropft. Nach vierstündigem Erhitzen unter Rückfluß wird auf Ammoniumchloridlösung gegeben, mit Ether extrahiert, mit Wasser gewaschen, über Magnesiumsulfat getrocknet und eingeengt. Nach Chromatographie mit Hexan an Kieselgel verbleiben 3,4 g an Produkt (= 46% der Theorie).
 n_D^{20} : 1,5775

In analoger Weise wurden die folgenden Verbindungen hergestellt:

Herstellungs- beispiel	Verbindung	Physikalische Konstante n_D^{20}
2	(4-Methoxyphenyl)-dimethyl-[3-(3-phenoxyphenyl)-propyl]-silan	1,5720
3	(4-Chlorphenyl)-[3-(4-fluor-3-phenoxyphenyl)-propyl]-dimethylsilan	1,5676
4	(4-Ethoxyphenyl)-dimethyl-[3-(3-phenoxyphenyl)-propyl]-silan	1,5673
5	[3-(4-Fluor-3-phenoxyphenyl)-propyl]-(4-methoxyphenyl)-dimethylsilan	1,5613
6	(4-Ethoxyphenyl)-[3-(4-fluor-3-phenoxyphenyl)-propyl]-dimethylsilan	1,5583

Die folgenden Anwendungsbeispiele dienen zur Erläuterung der Anwendungsmöglichkeiten der erfindungsgemäßen Verbindungen, die in Form ihrer Zubereitungen erfolgte:

Anwendungsbeispiel 1

Abtötende Wirkung auf Junglarven der Kohlschabe (*Plutella xylostella*)

Die erfindungsgemäßen Verbindungen wurden als wäßrige Emulsionen mit der Wirkstoffkonzentration 0,1% eingesetzt. Mit diesen Wirkstoffzubereitungen wurden Blumenkohlblättchen (*Brassica oleracea* var. botrytis) in Polystyrol-Petrischalen dosiert (4 mg Spritzbrühe/cm²) gespritzt. Nach dem Antrocknen der Spritzbeläge wurden in jede Petrischale 10 Junglarven der Kohlschabe (*Plutella xylostella*) eingezählt und für zwei Tage in den geschlossenen Petrischalen dem behandelten Futter exponiert. Kriterium für die Wirkungsbeurteilung war die Sterblichkeit der Raupen in % nach 2 Tagen.

Im beschriebenen Versuch erzielten die Verbindungen gemäß den Herstellungsbeispielen 1 bis 6 eine hundertprozentige Mortalitätswirkung.

Anwendungsbeispiel 2

Abtötende Wirkung auf Larven (L 2) des Ägyptischen Baumwollwurm (Spodoptera littoralis)

Die erfindungsgemäßen Verbindungen wurden als wäßrige Emulsionen mit der Wirkstoffkonzentration 0,1% eingesetzt. Mit diesen Wirkstoffzubereitungen wurden je ein Fliederblattpaar der Puffbohne (*Vicia faba*) sowie 10 Larven (L 2) des Ägyptischen Baumwollwurm (Spodoptera littoralis) pro Versuchsglied mit 4 mg Spritzbrühe/cm² in Polystyrol-Petrischalen dosiert gespritzt. Die geschlossenen Petrischalen wurden dann im Labor unter Langtagbedingungen für zwei Tage aufgestellt. Kriterium für die Wirkungsbeurteilung war die Mortalität der Larven in % nach zwei Tagen.

Im beschriebenen Versuch erbrachten die Verbindungen gemäß den Herstellungsbeispielen 1 bis 6 eine hundertprozentige Mortalität.

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☒ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.